

令和元年6月12日現在

機関番号：32613

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K14550

研究課題名（和文）スピン量子ドットセルオートマトン論理デバイスの理論的動作解析および設計

研究課題名（英文）Simulation and Design of Molecular Spin Quantum-Dot Cellular Automata

研究代表者

徳永 健（Tokunaga, Ken）

工学院大学・教育推進機構（公私立大学の部局等）・准教授

研究者番号：30467873

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 1,600,000円

研究成果の概要（和文）：既存の論理回路に代わる新たな論理回路として、ビフェロセニウムジボロン酸錯体（ダイマーおよびエステル）を用いた量子ドットセルオートマトンの動作シミュレーションを量子化学計算により実施した。その結果、ビフェロセニウムジボロン酸エステルが常温において、理論上はAND回路とOR回路として動作する可能性があることを明らかにした。さらに、静電ポテンシャルモデルを用いた新たな分子選別手法を提案した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

既存の電界効果トランジスタ（FET）に基づく論理回路は、その演算速度が近く上限に到達すると言われている。我々は、FETに代わる新たな論理回路として量子ドットセルオートマトンに着目した。ビフェロセニウムジボロン酸エステルを用いた量子ドットセルオートマトンが理論上は常温で論理回路として動作することを明らかにした。さらに、静電ポテンシャルモデルを用いた新たな分子選別手法を提案し、今後の分子選別の効率化を実現した。

研究成果の概要（英文）：As a new logic circuit to replace the existing logic circuit, we have simulated the operation of quantum-dot cell automaton using biferrrocenium diboronic acid complex (two kinds of dimer and ester) by quantum chemical calculation. It was clarified that biferrrocenium diboronate ester may theoretically operate as an AND circuit and an OR circuit at room temperature. Furthermore, we proposed a new molecular selecting method using electrostatic potential model.

研究分野：理論化学

キーワード：セルオートマトン 量子ドット 混合原子価 分子デバイス フェロセン 静電ポテンシャル 論理回路 スピントロニクス

1. 研究開始当初の背景

近年のコンピュータの飛躍的な性能向上は、中央処理装置 (CPU: Central Processing Unit) の性能向上に起因するところが多い。CPU は論理回路、さらには、最小単位として電界効果トランジスタ (FET: Field Effect Transistor) から構成されている。この FET の微細化や構造の工夫が CPU の性能向上をもたらしたが、微細化をさらに進めると、FET 間の配線の複雑化・電子のトンネル現象による FET の動作原理の破綻、という深刻な問題が起こる。

これらの問題を解決するアイデアとして、量子ドットセルオートマトン (QCA: Quantum-Dot Cellular Automata) 論理回路による論理演算が Lent らによって提案された。QCA 論理回路の構成単位である QCA セルは、4 つの量子ドットを 1 セットにして作られる (図 1)。このセルに 2 つの電子またはホールを注入し、電荷の反発を利用することにより、“0”と“1”の 2 つのデジタル状態を表現できる。さらに、セルを複数個組み合わせることによって、FET 論理回路と同等の論理演算機能を有する QCA 論理回路を構築できる (図 1)。QCA 論理回路の動作は、既に実験的に確認されているが、動作温度が非常に低い (数 10 mK) ことが問題になっていた。そこで、セルとして分子を用いる分子型の QCA セルが考案された。既に、分子を用いた QCA 回路の実験的な報告はされているが、セルの信号伝達特性と分子構造の関係についての詳細な知見は未だ得られていない。

我々は、理論的手法により分子型の QCA セルの信号伝達特性と分子構造を明らかにできると考えた。分子を用いた QCA 論理回路に関して、既存の FET 型論理回路を上回る演算性能を見出すことができれば、情報技術における劇的なブレークスルーとなる。

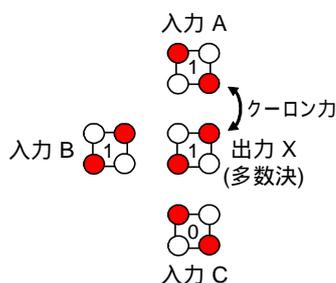


図 1 QCA 多数決回路。赤丸は電子やホールの位置を表す。

2. 研究の目的

本研究では、4 核金属錯体を用いた分子型の QCA セルの信号伝達特性 (電荷とスピンの分布) を密度汎関数法に基づき評価する。セルの信号伝達特性と分子構造の関係を明らかにするとともに、優れた信号伝達特性を有する QCA セルの設計・選別指針を確立する。

3. 研究の方法

4 核金属錯体として、図 2 に示すピフェロセニウムジボロン酸錯体 (ダイマー (r), ダイマー (p), エステル) を取りあげた。ここで、ダイマー (r) は中性状態の結晶構造、ダイマー (p) は電子酸化状態の結晶構造を表している。

次に、QCA 多数決回路の計算モデルを作った (図 3(a))。まず、錯体周辺に、12 個の点電荷を用いて 3 つの入力を配置する。各入力に 2 つのホールを注入することで状態 0, 1 の入力セルが生成される。入力 A, B, C はそれぞれ状態 0, 1 を取るため、入力 A, B, C の組合せは計 8 通りある (図 3(b))。入力パターン P1 ~ P8 それぞれに対する錯体内 Dot 1-Dot 4 の電荷分布から錯体の状態を判別し、多数決回路としての動作を明らかにした。

計算には量子化学計算ソフト Gaussian09 の密度汎関数法 (B3LYP) を用いた。基底関数は Fe は LanL2DZ, その他の原子は 6-31G(d,p) とし、錯体は 2 価陽イオン、三重項状態とした。

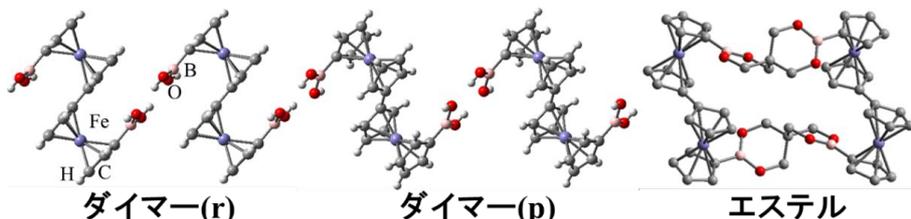


図 2 3 種類のピフェロセニウムジボロン酸錯体

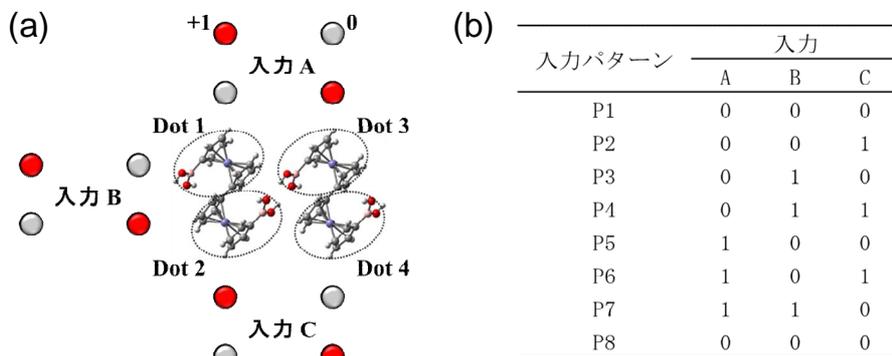


図3 (a) QCA の計算モデル(ダイマー(r)の例)、(b) 8通りの (A,B,C) の入力パターン

#### 4. 研究成果

各入力パターンに対する錯体の最安定状態は表1のようになった。すべての錯体で、P1, P2, P3は状態0、P6, P8は状態1となった。P5, P7は最も低いエネルギーを持つのは状態Rだった。一方で、P4では錯体ごとに状態が異なり、ダイマー(r)は状態0、ダイマー(p)は状態B、エステルは状態1となった。これは、ダイマー(r)とダイマー(p)は水素結合で2つの錯体が結合しているが、エステルではDot 1-Dot 3、Dot 2-Dot 4が架橋配位子でつながっており、電荷移動が起こりやすいためと考えられる。この結果から、エステルは入力Aを0に固定することにより入力BとCのAND回路として動作することが分かった。さらに、入力Cを1に固定することにより、エステルは入力AとBのOR回路としても動作することが分かった。また、これらの錯体では、電荷の分布とスピンの分布はほぼ一致することが分かった。

表1 8種類の入力パターンに対するピフェロセニウムジボロン酸錯体の状態

入力パターン	入力			出力		
	A	B	C	ダイマー(r)	ダイマー(p)	エステル
P1	0	0	0	0	0	0
P2	0	0	1	0	0	0
P3	0	1	0	0	0	0
<b>P4</b>	<b>0</b>	<b>1</b>	<b>1</b>	<b>0</b>	<b>B</b>	<b>1</b>
P5	1	0	0	R	R	R
P6	1	0	1	1	1	1
P7	1	1	0	R	R	R
P8	1	1	1	1	1	1

この結果を簡便に予測する方法として、静電ポテンシャル(ESP)モデルを考案した。QCAのスイッチは、静電相互作用による電荷の反発に基づくことから、ESPとQCAの動作原理の間には密接な関係がある。系のESPによりデバイス動作の予測が出来るならば、計算時間を大幅に短縮できる。そこで、錯体分子の代わりに4個のFe原子の位置に点電荷を1個ずつ配置したモデルを考えた(図4)。このモデルでは、図4に示す7つの状態それぞれのESPを求めることにより、錯体の最安定状態を予測する。

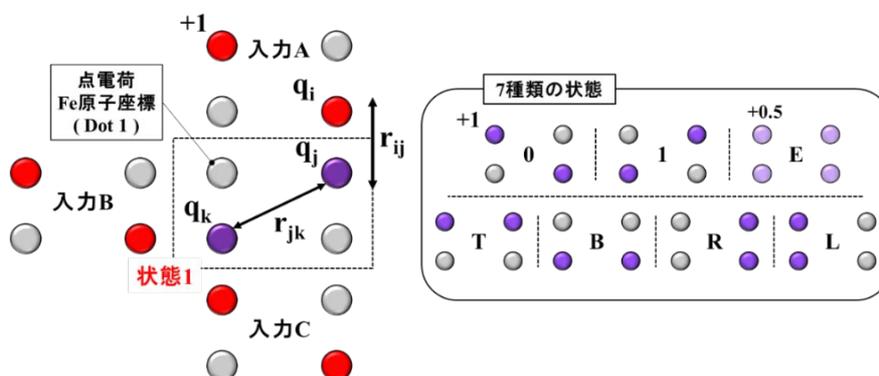


図4 Fe原子を点電荷に置き換えたESPモデル

図 5 に 3 つの錯体の ESP を示した。P4 は錯体ごとに異なる状態を取ることが分かった。ESP と量子化学計算を比較すると、ダイマー(p)とエステルでは、すべての入力パターンにおいて最安定状態が一致していることが分かった。ダイマー(r)では、簡易モデルの P4 は状態 1 が最も安定となるが、量子化学計算では状態 0 が安定となったため、P4 の結果は一致しなかった。ESP は 3 つの錯体の P1-P8 (全 24 パターン) の中の 23 パターンで量子化学計算と一致することから、ESP はデバイス動作の簡便な予測に非常に有効であることが分かった。このことは、ESP により量子化学計算の結果を予測し、事前の分子選別が可能であることを示唆している。

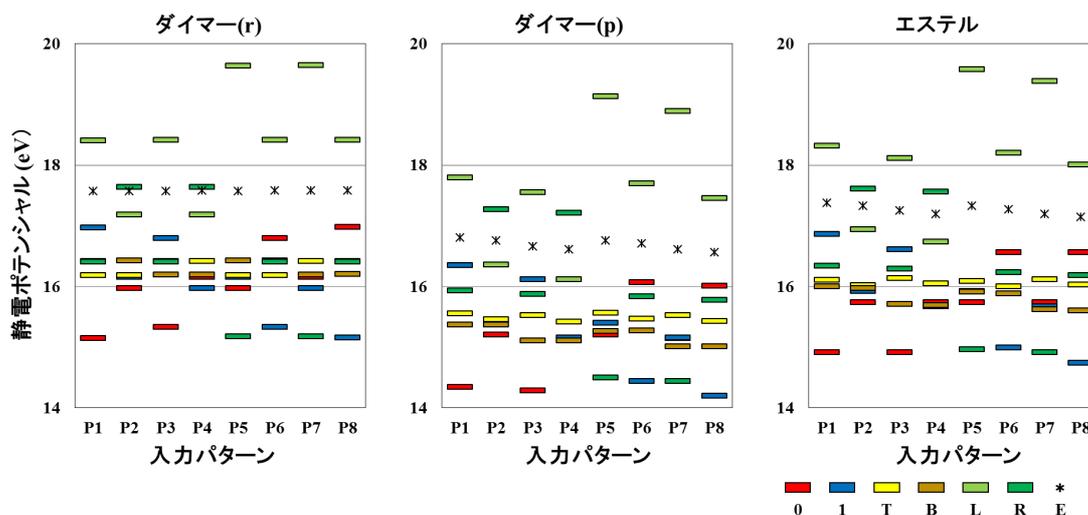


図 5 静電ポテンシャルモデルで得られたエネルギー

最後に、時間依存密度汎関数法を用いて QCA 回路の動作温度を予測した。特に論理回路としての動作が期待されるエステルでは、“基底状態”と“基底状態とは異なるセル状態を有する最初の励起状態”の間のエネルギー差が 450 meV 以上になることが分かった。このことは、理論上は、エステルを用いた AND 回路・OR 回路が常温でも十分に動作する可能性があることを示唆している。

結論として、本研究期間で以下の 2 点を明らかにした。

- ビフェロセニウムジボロン酸エステルが AND 回路、OR 回路として動作すること。
- 静電ポテンシャル計算により量子化学計算の結果を高い精度で予測できる、つまり、事前の分子選別が可能であること。

これらの成果は、今後の QCA の研究に大きく貢献できると考えている。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 1 件)

Kenosuke Itoh, Junya Matsuura, Hideaki Kamiya, Ryuki Kudo, Yuki Takahashi, Yuta Hashimoto, Kenji Yoza, Ken Tokunaga, Hideaki Fujii, Hiroyuki Suga, Lewis Acid Catalysis in Intermolecular [2+2] Photocycloaddition of Coumarin-3-carboxamide Bearing 2-Oxazolidinone Auxiliary with n-Propyl Vinyl Ether and Vinyl Pivalate, *Heterocycles*, 97, 2018, 591-603

[学会発表](計 6 件)

徳永 健、秋山 良、溶媒和構造の変化で駆動する大粒子の分子動力学シミュレーション、日本物理学会第 74 回年次大会、2019

徳永 健、秋山 良、溶媒和変化によって駆動される自走粒子の分子シミュレーション、研究会「凝縮系の理論化学」、2019

徳永 健、秋山 良、溶媒和変化による自走粒子の分子動力学シミュレーション、「水と ATP エネルギー」研究会、2019

Ken Tokunaga, Ryo Akiyama, Motion of Macroparticle driven by Chemical Reaction in a Liquid: Molecular Dynamics Simulation of Solvation Motor、International Congress on Pure & Applied Chemistry (ICPAC) Langkawi 2018, 2018

Keishiro Tahara, Nazuna Terashita, Shiomi Yabumoto, Jun-ichi Kikuchi, Yoshiki Ozawa, Masaaki Abe, Ken Tokunaga, Fabrication of External Charge-Responsive Biferrocenium Toward Half-Cells for Quantum Cellular Automata, 43rd International Conference on

Coordination Chemistry (ICCC2018), 2018  
Ken Tokunaga, Ryo Akiyama, Displacement of Solvation Motor in Infinite System, 12th  
Mini Symposium on Liquids (MSL 2018), 2018

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年：  
国内外の別：

取得状況(計0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年：  
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究分担者

研究分担者氏名：

ローマ字氏名：

所属研究機関名：

部局名：

職名：

研究者番号(8桁)：

### (2) 研究協力者

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。